

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2003-342021

(P2003-342021A)

(43) 公開日 平成15年12月3日 (2003.12.3)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テーマコード(参考)
C 0 1 F 7/02		C 0 1 F 7/02	G 4 F 0 7 1
C 0 8 J 5/00	C E R	C 0 8 J 5/00	C E R 4 G 0 7 6
	C E Z		C E Z 4 J 0 0 2
C 0 8 K 9/02		C 0 8 K 9/02	4 J 0 3 7
C 0 8 L 101/00		C 0 8 L 101/00	
審査請求 未請求 請求項の数 6 O L (全 9 頁) 最終頁に続く			

(21) 出願番号 特願2002-153794 (P2002-153794)

(22) 出願日 平成14年5月28日 (2002.5.28)

(71) 出願人 000237020

ポリマテック株式会社

東京都中央区日本橋本町4丁目8番16号

(72) 発明者 館田 伸哉

東京都北区田端5丁目10番5号 ポリマテック株式会社 R & D センター内

(74) 代理人 100068755

弁理士 恩田 博宣 (外1名)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 酸化アルミニウム粉末組成物及びそれを含有する熱伝導性成形体

(57) 【要約】

【課題】 酸化アルミニウム粉末の凝集の発生を抑制することができる酸化アルミニウム粉末組成物及び酸化アルミニウム粉末を高分子マトリックス中に容易かつ均一に分散させることができる熱伝導性成形体を提供する。

【解決手段】 酸化アルミニウム粉末組成物は、平均粒径が1～20 μ mの粒子よりなる酸化アルミニウム粉末に、該酸化アルミニウム粉末の凝集を抑制するための平均粒径が0.5～100 nmのナノ粒子よりなる微粉末が混合されている。微粉末は酸化アルミニウムにより形成されていることが好ましく、酸化アルミニウム粉末100重量部に対して0.01～5重量部配合されることが好ましい。熱伝導性成形体は酸化アルミニウム粉末組成物が高分子マトリックス中に分散され射出成形法などによって成形されることにより得られる。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 平均粒径が $1 \sim 20 \mu\text{m}$ の粒子よりなる酸化アルミニウム粉末に、該酸化アルミニウム粉末の凝集を抑制するための平均粒径が $0.5 \sim 100 \text{ nm}$ のナノ粒子よりなる微粉末が混合されていることを特徴とする酸化アルミニウム粉末組成物。

【請求項 2】 前記微粉末の含有量は、酸化アルミニウム粉末 100 重量部に対して $0.01 \sim 5$ 重量部である請求項 1 に記載の酸化アルミニウム粉末組成物。

【請求項 3】 前記微粉末が、酸化アルミニウムにより形成されている請求項 1 又は請求項 2 に記載の酸化アルミニウム粉末組成物。

【請求項 4】 高分子マトリックス中に請求項 1 から請求項 3 のいずれか一項に記載の酸化アルミニウム粉末組成物が分散されて成形されている熱伝導性成形体であって、平均粒径が $0.5 \sim 100 \text{ nm}$ のナノ粒子は、平均粒径が $1 \sim 20 \mu\text{m}$ の酸化アルミニウム粒子の表面に付着されていることを特徴とする熱伝導性成形体。

【請求項 5】 さらに繊維状熱伝導性充填剤又はグラファイトよりなる粉末状熱伝導性充填剤が分散されて成形されている請求項 4 に記載の熱伝導性成形体。

【請求項 6】 前記微粉末が、酸化アルミニウムにより形成されている請求項 4 又は請求項 5 に記載の熱伝導性成形体。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、粒径が $1 \sim 20 \mu\text{m}$ というミクロンオーダーの凝集し易い酸化アルミニウム粉末の分散性を向上させ、酸化アルミニウム粉末の凝集が抑制されるように構成されている酸化アルミニウム粉末組成物及びそれを含有する熱伝導性成形体に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 従来、高分子マトリックス中に熱伝導性充填剤を分散させて熱伝導性成形体を得る手法が多く用いられている。なかでも、酸化アルミニウムは、熱伝導性と絶縁性に優れるため、熱伝導性充填剤として広く使用されてきた。

【0003】 酸化アルミニウム粉末を熱伝導性充填剤として使用する場合、粒径が $20 \sim 100 \mu\text{m}$ 程度の比較的大きい粒子の粉末と、粒径が $1 \sim 5 \mu\text{m}$ 程度の比較的小さい粒子の粉末とを併用することにより、比較的大きい粒子の粉末のみを使用した場合のものよりも高い熱伝導率の熱伝導性成形体を得ることができる。これは、比較的小さい粒子が、比較的大きい粒子の粒子間の隙間を埋めることから生じる特性である。

【0004】 また、近年の各種電子部品の高性能化により、電子部品から発生する熱量が膨大なものとなっており、熱伝導性の高い成形体が要求されてきた。この要求に応えるには、酸化アルミニウム粉末のみを充填し

た熱伝導性成形体では十分な熱伝導率を確保できないため、炭素繊維等の繊維状熱伝導性充填剤又はグラファイト等の粉末状熱伝導性充填剤等の熱伝導性の高い充填剤と、酸化アルミニウム粉末とを併用することが多くなってきた。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】 しかしながら、粒径が $1 \sim 5 \mu\text{m}$ 程度の比較的小さい粒子の酸化アルミニウム粉末は、保存環境などによって凝集が進む場合があり、この凝集した比較的小さい粒子の酸化アルミニウム粉末を高分子マトリックス中に均一に分散させるのに手間が掛かった。すなわち、凝集した比較的小さい粒子の酸化アルミニウム粉末を高分子マトリックス中に均一に分散させる場合、ハードミキサー等を使用して激しく攪拌を行う。これにより、酸化アルミニウム粉末の凝集を破壊して高分子マトリックス中に均一分散させるのであるが、攪拌時間が長くなり、生産性が悪く、生産コストが嵩むという問題があった。

【0006】 さらに、炭素繊維等の繊維状熱伝導性充填剤又はグラファイト等の粉末状熱伝導性充填剤等の熱伝導性が高い充填剤と、酸化アルミニウム粉末とを併用する。この場合、酸化アルミニウム粉末を均一に分散させるために、ハードミキサー等を使用して激しく攪拌すると、繊維状熱伝導性充填剤は細かく切断され、粉末状熱伝導性充填剤は脆いためさらに細かく破碎され、得られる成形体の熱伝導率が低くなってしまう。このため、ハードミキサー等を使用して激しく攪拌することができなくなり、酸化アルミニウム粉末を均一分散させることができず、成形体の表面に酸化アルミニウム粉末の凝集が現れてしまう。その結果、成形体の表面状態が乱れて特性にばらつきが発生したり、成形体の表面から酸化アルミニウム粉末が脱落したりする等の不具合が生じていた。

【0007】 本発明は、上記のような従来技術に存在する問題点に着目してなされたものである。その目的とするところは、酸化アルミニウム粉末の凝集の発生を抑制することができる酸化アルミニウム粉末組成物を提供することにある。その他の目的とするところは、酸化アルミニウム粉末を高分子マトリックス中に容易かつ均一に分散させることができる熱伝導性成形体を提供することにある。

【0008】

【課題を解決するための手段】 上記の目的を達成するために、請求項 1 に記載の発明の酸化アルミニウム粉末組成物は、平均粒径が $1 \sim 20 \mu\text{m}$ の粒子よりなる酸化アルミニウム粉末に、該酸化アルミニウム粉末の凝集を抑制するための平均粒径が $0.5 \sim 100 \text{ nm}$ のナノ粒子よりなる微粉末が混合されていることを特徴とするものである。

【0009】 請求項 2 に記載の発明の酸化アルミニウム

粉末組成物は、請求項 1 に記載の発明において、前記ナノ粒子の含有量は、球状酸化アルミニウム粉末 100 重量部に対して 0.01～5 重量部であるものである。

【0010】請求項 3 に記載の発明の酸化アルミニウム粉末組成物は、請求項 1 又は請求項 2 に記載の発明において、前記微粉末が、酸化アルミニウムにより形成されているものである。

【0011】請求項 4 に記載の発明の熱伝導性成形体は、高分子マトリックス中に請求項 1 から請求項 3 のいずれか一項に記載の酸化アルミニウム粉末組成物が分散されて形成されている熱伝導性成形体であって、平均粒径が 0.5～100 nm のナノ粒子は、平均粒径が 1～20 μm の酸化アルミニウム粒子の表面に付着されていることを特徴とするものである。

【0012】請求項 5 に記載の発明の熱伝導性成形体は、請求項 4 に記載の発明において、さらに繊維状熱伝導性充填剤又はグラファイトよりなる粉末状熱伝導性充填剤が分散されて形成されているものである。

【0013】請求項 6 に記載の発明の熱伝導性成形体は、請求項 4 又は請求項 5 に記載の発明において、前記微粉末が、酸化アルミニウムにより形成されているものである。

【0014】

【発明の実施の形態】以下、本発明の実施形態について詳細に説明する。本実施形態の酸化アルミニウム (Al_2O_3) 粉末組成物は、平均粒径が 1～20 μm の粒子よりなる酸化アルミニウム粉末に、該酸化アルミニウム粉末の凝集を抑制するための平均粒径が 0.5～100 nm のナノ粒子よりなる微粉末が混合されているものである。

【0015】すなわち、平均粒径が 1～20 μm というミクロンオーダー（以下、単にミクロンオーダーともいう）の粒子よりなる酸化アルミニウム粉末に、平均粒径が 0.5～100 nm のナノ粒子（以下、単にナノ粒子ともいう）よりなる微粉末を混合してなるものである。このように、ミクロンオーダーの粒子よりなる酸化アルミニウム粉末に、ナノ粒子よりなる微粉末を混合することで、ミクロンオーダーの酸化アルミニウム粒子の表面にナノ粒子が無数に付着（吸着）される。

【0016】そのため、ミクロンオーダーの酸化アルミニウム粒子間にナノ粒子が介在し、酸化アルミニウム粉末の凝集が抑制される。ここで、酸化アルミニウム粒子及びナノ粒子は、酸化アルミニウム粉末の凝集を抑制するために、前記平均粒径の範囲内において粒度分布が平均粒径近辺で粒度分布の狭い（シャープな）狭帯域であることが望ましい。

【0017】酸化アルミニウムの粒子の形状は、酸化アルミニウム粉末組成物中の酸化アルミニウム粒子の分散性を良好に保持するために、球状又はそれに近い形状であることが最も好ましいが、多面体状、円柱状、その他

の塊状であってもよい。

【0018】一般に粒子の凝集は、粒子間にファンデルワールス力等の引力が作用することによって発生する。このため、ナノ粒子をミクロンオーダーの酸化アルミニウム粒子の表面に付着させることにより、ミクロンオーダーの酸化アルミニウム粒子表面の凹凸が粒子間の間隙を増大させたこととなり、ミクロンオーダーの粒子間の引力が小さくなる。その結果、酸化アルミニウム粒子間の凝集が抑制される。

【0019】ナノ粒子の平均粒径が 0.5 nm 未満であると、ミクロンオーダーの酸化アルミニウム粒子間の間隙が小さく、ファンデルワールス力等の粒子間の引力を減少させることができない。一方、ナノ粒子の平均粒径が 100 nm を越えると、ミクロンオーダーの酸化アルミニウム粒子表面へのナノ粒子の付着が不十分となり、ミクロンオーダーの酸化アルミニウム粒子が凝集しやすくなる。ナノ粒子は、粒度分布や粒子の生産安定性の観点から、平均粒径が 5～50 nm であることが好ましい。

【0020】ナノ粒子すなわち微粉末を形成する材料としては、酸化アルミニウム、酸化ケイ素 (SiO_2)、炭酸カルシウム ($CaCO_3$) 等が使用される。これらのうち、熱伝導性及び絶縁性を有する酸化アルミニウム又は酸化ケイ素が好ましい。なかでも特に、熱伝導性に優れ、ミクロンオーダーの酸化アルミニウム粉末と同一素材の酸化アルミニウムが好ましい。

【0021】さらに、酸化アルミニウム粉末 100 重量部に、ナノ粒子よりなる微粉末 0.01～5 重量部を混合することによって、酸化アルミニウム粉末の凝集を効果的に抑制することができる。微粉末の混合量が 0.01 重量部未満であると、酸化アルミニウム粉末の分散効果が十分ではない。一方、微粉末の混合量が 5 重量部を越えると、ナノ粒子を混合した酸化アルミニウム粉末を高分子マトリックスに配合するときに著しく粘度が上昇してしまい、作業性が悪くなる。

【0022】次に、熱伝導性成形体は高分子マトリックス中に前述した酸化アルミニウム粉末が混合されて形成されることにより得られるものである。熱伝導性成形体の形状はシート状のほか、所定の立体形状など適用部位に応じて適宜決定される。

【0023】熱伝導性成形体中における酸化アルミニウム粉末組成物等の熱伝導性充填剤の配合割合は常法に従って決定されるが、通常 30～80 体積%の範囲である。この配合割合が 30 体積%未満の場合、熱伝導性成形体の熱伝導性が不足しやすくなる。一方、80 体積%を越える場合、高分子マトリックスに熱伝導性充填剤を配合した組成物の粘度が高くなり、成形が困難になる場合がある。

【0024】ここで用いられる高分子マトリックスを形成する材料は特に限定されるものではなく、通常の熱可

10

20

30

40

50

塑性樹脂、熱可塑性エラストマー、反応硬化性樹脂、架橋ゴム等から用途と要求性能に応じて適宜選択される。この材料としては、常温で流動性のある液状の高分子又は常温では固体で加熱により熔融して液状となる高分子であることが好ましい。

【0025】熱可塑性樹脂としては具体的に、ポリエチレン、ポリプロピレン、エチレン-プロピレン共重合体などのエチレン- α -オレフィン共重合体、ポリメチルペンテン、ポリ塩化ビニル、エチレン-酢酸ビニル共重合体、ポリアセタール、ポリテトラフルオロエチレン等のフッ素樹脂、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリスチレン、スチレン-アクリロニトリル共重合体、ABS樹脂、脂肪族及び芳香族ポリアミド類、ポリメタクリル酸エステル類、ポリカーボネート、シリコーン樹脂、アイオノマー等が挙げられる。

【0026】熱可塑性エラストマーとしては、スチレン系熱可塑性エラストマー、オレフィン系熱可塑性エラストマー、塩化ビニル系熱可塑性エラストマー、ポリエステル系熱可塑性エラストマー、ポリウレタン系熱可塑性エラストマー、ポリアミド系熱可塑性エラストマー等が挙げられる。

【0027】反応性硬化性樹脂としては、エポキシ樹脂、ポリイミド樹脂、フェノール樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、ジアリルフタレート樹脂、ポリウレタン樹脂等が挙げられる。

【0028】架橋ゴムとしては、天然ゴム、ブタジエンゴム、イソプレングム、スチレン-ブタジエン共重合ゴム、クロロプレングム、エチレン-プロピレングム、ブチルゴム、フッ素ゴム、ウレタングム、シリコーンゴム等が挙げられる。

【0029】これらのなかでも、シリコーンゴム、エポキシ樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、ポリイミド樹脂、ポリウレタン樹脂及び熱可塑性エラストマーより選ばれる少なくとも1種の材料が、耐熱性などの温度特性や電気的信頼性の観点から好ましい。

【0030】熱伝導性成形体中には、熱伝導性充填剤としての酸化アルミニウム粉末以外の熱伝導性充填剤、難燃剤、着色剤、安定剤などを配合してもよい。そのような熱伝導性充填剤としては、例えば銀、銅或いは金などの金属や、酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、窒化ホウ素、窒化アルミニウム、窒化ケイ素、炭化ケイ素、水酸化アルミニウムなどセラミックスのほか、金属被覆樹脂、黒鉛化炭素繊維、黒鉛化されていない炭素繊維、天然黒鉛、人造黒鉛、メソカーボンマイクロビーズ、ダイヤモンド粉などが挙げられる。これらの形態としては、例えば粉末状、繊維状、鱗片状、ウィスカー状、マイクロコイル状、ナノチューブ状など挙げられるが、特に限定されるものではない。

【0031】また、高分子マトリックス中に酸化アルミ

ニウム粉末が分散されている熱伝導性成形体は、平均粒径が0.5~100nmのナノ粒子が、ミクロンオーダーの酸化アルミニウム粒子の表面に、無数に付着されているものである。従って、ミクロンオーダーの酸化アルミニウム粒子間で直接接触するのを回避できるとともに、酸化アルミニウム粒子間に作用する引力を低減させることができる。よって、ミクロンオーダーの酸化アルミニウム粉末を高分子マトリックス中に均一分散させることができる。

【0032】このように高分子マトリックス中への酸化アルミニウム粉末組成物の分散性がよいことから、酸化アルミニウム粉末組成物を高分子マトリックス中へ容易にしかも短時間で分散させることができる。このため、高分子マトリックス中に、酸化アルミニウム粉末に加えて繊維状熱伝導性充填剤又はグラファイトよりなる粉末状熱伝導性充填剤を配合する場合、激しく攪拌することなく、短時間のうちに均一に分散させることができる。よって、繊維状熱伝導性充填剤又はグラファイトよりなる粉末状熱伝導性充填剤を切断又は破碎することなく、元の形状を維持することができ、熱伝導性を高めることができる。

【0033】ナノ粒子は、粒子の形状、製造方法などについて限定されるものではない。例えば、ナノ粒子又は前記酸化アルミニウム粒子の分散性を向上させるために、ナノ粒子又は酸化アルミニウム粒子の表面がシランカップリング剤、チタネートカップリング剤等のカップリング剤等で表面処理されていてもよい。さらに、ナノ粒子は、二次凝集を形成していないことが好ましいが、仮に二次凝集を形成している場合にはその凝集体の平均粒径が200nm以下であることが好ましい。

【0034】ミクロンオーダーの粒子よりなる酸化アルミニウム粉末とナノ粒子よりなる微粉末との混合方法は、ヘンシェルミキサー、ハードミキサー等を用いることで、混合が容易かつ十分となる。

【0035】前述した酸化アルミニウム粉末を用いて熱伝導性成形体を成形する方法は、特に限定されるものではなく常法に従って行なわれる。例えば、原料組成物が流動性のある液状体である場合には、塗装、印刷、ディスペンサー、ポッティング、ロール等を利用した方法で成形することができる。また、原料組成物が常温では固体で加熱により熔融して液状になる熱可塑性材料である場合には、金型を使用した射出成形法、圧縮成形法等の方法で加工することができる。

【0036】さて、酸化アルミニウム粉末組成物は、ミクロンオーダーの粒子よりなる酸化アルミニウム粉末にナノ粒子よりなる微粉末がヘンシェルミキサーなどによって攪拌混合されることによって調製される。このとき、ナノ粒子よりなる微粉末はミクロンオーダーの粒子よりなる酸化アルミニウム粉末の表面に付着され、ミクロンオーダーの粒子間に存在する。すなわち、酸化アル

ミニウム粒子表面に付着された微粉末による凹凸が粒子間の間隙を増大させることとなる。そのため、酸化アルミニウム粒子間の間隙が増大され、粒子間に作用するファンデルワールス力等の引力が小さくなる。

【0037】このようにして得られた酸化アルミニウム粉末組成物を高分子マトリックス中に分散させて射出成形法などによって成形することにより、熱伝導性成形体
10 11 12 13 14 15 16 17 18 19 20 21 22 23 24 25 26 27 28 29 30 31 32 33 34 35 36 37 38 39 40 41 42 43 44 45 46 47 48 49 50
が得られる。このとき、前述のようにミクロンオーダーの酸化アルミニウム粒子間の引力が低下されていることから、熱伝導性成形体中の酸化アルミニウム粉末は高分子マトリックス中に均一に分散される。その結果、酸化アルミニウム粉末組成物に繊維状熱伝導性充填剤又はグラファイトよりなる粉末状熱伝導性充填剤を配合して熱伝導性のよい熱伝導性成形体を得ることができる。

【0038】このようにして得られた熱伝導性成形体は、例えば半導体素子、電源或いは光源などの発熱部材と、プリント配線基板、放熱板、放熱ゴムシート、半導体パッケージ用部品、ヒートシンク、ヒートスプレッダー或いは筐体などの放熱部材との間に介装されて用いられる。そして、発熱部材にて発生する熱は熱伝導性成形
20 21 22 23 24 25 26 27 28 29 30 31 32 33 34 35 36 37 38 39 40 41 42 43 44 45 46 47 48 49 50
体を介して放熱部材に伝達され、外部へ放散される。

【0039】以上の実施形態により発揮される効果を以下にまとめて記載する。

・ 本実施形態の酸化アルミニウム粉末組成物は、ミクロンオーダーの粒子よりなる酸化アルミニウム粉末にナノ粒子よりなる微粉末が混合されて調製される。このため、酸化アルミニウム粒子間の間隙が微粉末により増大されて粒子間の引力が小さくなっており、酸化アルミニウム粉末の凝集の発生を抑制することができ、その分散性を向上させることができる。

【0040】従って、酸化アルミニウム粉末組成物を調製する場合、ハードミキサー等を使用して激しく攪拌を行い酸化アルミニウム粉末の凝集を破壊する必要がなく、容易に攪拌でき、攪拌時間を短くすることができる。その結果、生産性が向上し、生産コストを低減させることができる。加えて、繊維状熱伝導性充填剤又は粉末状熱伝導性充填剤を添加した場合、繊維状熱伝導性充填剤が細かく切断されたり、粉末状熱伝導性充填剤が細かく破碎されたりすることがなく、熱伝導性の低下を防止することができる。

【0041】・ 前記微粉末の含有量が酸化アルミニウム粉末100重量部に対して0.01～5重量部であることにより、酸化アルミニウム粉末の凝集の発生を有効かつ確実に抑制することができる。

【0042】・ また、微粉末が酸化アルミニウムにより形成されていることによって、酸化アルミニウム粉末組成物の熱伝導性と絶縁性を向上させることができる。

・ 熱伝導性成形体は、高分子マトリックス中に上記の酸化アルミニウム粉末組成物が分散されて成形されている。すなわち、ナノ粒子よりなる微粉末がミクロンオー

ダーの粒子よりなる酸化アルミニウム粉末の表面に付着されている。従って、熱伝導性成形体は、酸化アルミニウム粉末を激しく攪拌することなく容易に高分子マトリックス中に分散させることができると同時に、均一に分散させることができる。その結果、熱伝導性成形体は良好な熱伝導性を発揮することができる。

【0043】・ また、熱伝導性成形体が酸化アルミニウム粉末組成物に加えて繊維状熱伝導性充填剤又はグラファイトよりなる粉末状熱伝導性充填剤が分散されて成形されることにより、熱伝導性成形体の熱伝導性を一層高めることができる。

【0044】・ さらに、微粉末が酸化アルミニウムにより形成されていることによって、酸化アルミニウム粉末組成物より得られる熱伝導性成形体の熱伝導性及び絶縁性を向上させることができる。

【0045】・ また、凝集し易い酸化アルミニウム粒子にカップリング剤を混ぜることにより表面処理して分散性を向上させる場合、長時間の混合操作を施すことなく、酸化アルミニウム粒子よりなる酸化アルミニウム粉末を高分子マトリックス中に速やかに分散させることができる。従って、カップリング剤による表面処理は、酸化アルミニウム粉末表面のカップリング剤が蒸発して表面処理の効果が低下するのを防止することができる。

【0046】

【実施例】以下に実施例を挙げて前記実施形態をさらに具体的に説明するが、本発明は各実施例によって何ら制限されるものではない。

（実施例1）平均粒径3 μ mの球状酸化アルミニウム粒子よりなる酸化アルミニウム粉末（株式会社マイクロ製、商品名AX3-32）500gに対し、平均粒径7nmの酸化ケイ素のナノ粒子よりなる微粉末（日本アエロジル株式会社製、商品名AEROSIL 300CF）0.5gをヘンシェルミキサーにより1分間攪拌混合し、実施例1の酸化アルミニウム粉末組成物を得た。

【0047】実施例1の酸化アルミニウム粉末組成物を250メッシュの篩にかけ、残留した粒子の重量を計測した結果、1.6gであった。また、常温で24時間放置した後、同様に250メッシュの篩にかけ、残留した粒子の重量を計測した結果、1.9gであった。

（実施例2）実施例1と同じ平均粒径3 μ mの球状酸化アルミニウム粒子よりなる酸化アルミニウム粉末500gに対し、平均粒径13nmの酸化アルミニウムのナノ粒子よりなる微粉末（日本アエロジル株式会社製、酸化アルミニウムC）0.5gをヘンシェルミキサーにより1分間攪拌混合した。このようにして、実施例2の酸化アルミニウム粉末組成物を得た。

【0048】実施例2の酸化アルミニウム粉末組成物を250メッシュの篩にかけ、残留した粒子の重量を計測した結果、1.8gであった。また、常温で24時間放置した後、同様に250メッシュの篩にかけ、残留した

粒子の重量を計測した結果、2.1gであった。

【実施例3】実施例1と同じ平均粒径3 μ mの球状酸化アルミニウム粒子よりなる酸化アルミニウム粉末500gに対し、平均粒径40nmの酸化ケイ素のナノ粒子よりなる微粉末（日本アエロジル株式会社製、商品名AEROSIL OX50）0.5gをヘンシェルミキサーにより1分間攪拌混合し、実施例3の酸化アルミニウム粉末組成物を得た。

【0049】実施例3の酸化アルミニウム粉末組成物を250メッシュの篩にかけ、残留した粒子の重量を計測した結果、1.9gであった。また、常温で24時間放置した後、同様に250メッシュの篩にかけ、残留した粒子の重量を計測した結果、2.1gであった。

（比較例1）実施例1と同じ平均粒径3 μ mの球状酸化アルミニウム粒子よりなる酸化アルミニウム粉末500gを比較例1の酸化アルミニウム粉末とし、250メッシュの篩にかけ、残留した粒子の重量を計測した結果、30.6gであった。また、常温で24時間放置した後、同様に250メッシュの篩にかけ、残留した粒子の重量を計測した結果、31.8gであった。

（比較例2）実施例1と同じ平均粒径3 μ mの球状酸化アルミニウム粒子よりなる酸化アルミニウム粉末500gに対し、平均粒径150nmの酸化チタンのナノ粒子よりなる微粉末（昭和電工株式会社製、商品名S-10）0.5gをヘンシェルミキサーにより1分間攪拌混合し、比較例2の酸化アルミニウム粉末組成物を得た。

【0050】比較例2の酸化アルミニウム粉末組成物を250メッシュの篩にかけ、残留した粒子の重量を計測した結果、7.4gであった。また、常温で24時間放置した後、同様に250メッシュの篩にかけ、残留した粒子の重量を計測した結果、7.7gであった。（比較例3）実施例1と同じ平均粒径3 μ mの球状酸化アルミニウム粒子よりなる酸化アルミニウム粉末500gをシランカップリング剤（東レ・ダウコーニング・シリコン株式会社製、商品名AY43-004、ジメチルジメトキシシラン）にて乾式法により表面処理し、比較例3の酸化アルミニウム粉末を得た。

【0051】比較例3の酸化アルミニウム粉末を250メッシュの篩にかけ、残留した粒子の重量を計測した結果、10.5gであった。また、常温で24時間放置した後、同様に250メッシュの篩にかけ、残留した粒子の重量を計測した結果、27.5gであった。 *

*（実施例4）実施例1と同じ平均粒径3 μ mの球状酸化アルミニウム粒子よりなる酸化アルミニウム粉末500gに対し、実施例2と同じ平均粒径13nmの酸化アルミニウムのナノ粒子よりなる微粉末2.5gをヘンシェルミキサーにより1分間攪拌混合し、実施例4の酸化アルミニウム粉末組成物を得た。

【0052】実施例4の酸化アルミニウム粉末組成物を250メッシュの篩にかけ、残留した粒子の重量を計測した結果、1.9gであった。また、常温で24時間放置した後、同様に250メッシュの篩にかけ、残留した粒子の重量を計測した結果、2.1gであった。

（実施例5）実施例1と同じ平均粒径3 μ mの球状酸化アルミニウム粒子よりなる酸化アルミニウム粉末500gに対し、実施例2と同じ平均粒径13nmの酸化アルミニウムのナノ粒子よりなる微粉末5.0gをヘンシェルミキサーにより1分間攪拌混合し、実施例5の酸化アルミニウム粉末組成物を得た。

【0053】実施例5の酸化アルミニウム粉末組成物を250メッシュの篩にかけ、残留した粒子の重量を計測した結果、1.8gであった。また、常温で24時間放置した後、同様に250メッシュの篩にかけ、残留した粒子の重量を計測した結果、2.0gであった。

（実施例6）実施例1と同じ平均粒径3 μ mの球状酸化アルミニウム粒子よりなる酸化アルミニウム粉末500gに対し、実施例2と同じ平均粒径13nmの酸化アルミニウムのナノ粒子よりなる微粉末25gをヘンシェルミキサーにより1分間攪拌混合し、実施例6の酸化アルミニウム粉末組成物を得た。

【0054】実施例6の酸化アルミニウム粉末組成物を250メッシュの篩にかけ、残留した粒子の重量を計測した結果、1.8gであった。また、常温で24時間放置した後、同様に250メッシュの篩にかけ、残留した粒子の重量を計測した結果、2.1gであった。

【0055】上記の実施例1～6の酸化アルミニウム粉末組成物及び比較例1～3の酸化アルミニウム粉末の凝集度試験結果を表1及び表2に示した。さらに、表2には酸化アルミニウム粉末を常温で24時間放置した後、炭素繊維とともにシリコンゴムに配合した組成物の粘度を測定した結果を示した。

【0056】

【表1】

	実施例 1	実施例 2	実施例 3	比較例 1	比較例 2	比較例 3
酸化アルミニウム 平均粒径 3 μm	500 g	500 g	500 g	500 g	500 g	500 g
ナノ粒子 (SiO_2) 平均粒径 7 nm	0.5 g	—	—	—	—	—
ナノ粒子 (Al_2O_3) 平均粒径 13 nm	—	0.5 g	—	—	—	—
ナノ粒子 (SiO_2) 平均粒径 40 nm	—	—	0.5 g	—	—	—
ナノ粒子 (CaCO_3) 平均粒径 150 nm	—	—	—	—	0.5 g	—
カップリング 剤	×	×	×	×	×	○
残留粒子重量 (g)	1.7	1.8	1.8	30.6	7.4	10.5
残留粒子重量 24時間後 (g)	1.9	2.1	2.1	31.8	7.7	27.5

【0057】

【表2】

	実施例 4	実施例 5	実施例 6
酸化アルミニウム 平均粒径 3 μm	500 g	500 g	500 g
ナノ粒子 (Al_2O_3) 平均粒径 13 nm	0.25 g	5.0 g	25 g
残留粒子重量 (g)	1.9	1.8	1.9
残留粒子重量 24時間後 (g)	2.1	2.0	2.1
組成物粘度 (Pa \cdot s)	29	29	30

実施例1～6に比べて比較例1～3は、残留粒子重量が多いことが分かる。各比較例の酸化アルミニウム粉末が凝集しているためである。特に、比較例3については、
常温で24時間放置した後、残留粒子重量が極端に増え*

*た。

【0058】さらに、実施例1～6の酸化アルミニウム粉末及び比較例1～3の酸化アルミニウム粉末400重量部を常温で24時間放置した。その後、これを炭素繊維（株式会社ベトカマテリアルズ製、商品名L359）100重量部とともにシリコーンゴム（旭化成ワッカーシリコーン株式会社製、ELASTOSIL（登録商標）RT745-S）100重量部に配合した。得られた組成物を金型に注入し、恒温槽中で150℃、30分間の成形を行って熱伝導性成形体を作製した。その熱伝導性成形体について熱抵抗値を測定した。その結果を表3に示した。熱抵抗値の測定方法は、各実施例及び各比較例の組成物から、長さ10mm、幅10mm、厚み1mmのサンプルを成形し、これらのサンプルを25Wのヒータと放熱板との間に挟み、ヒータが発熱して10分後のヒータと放熱板の温度差（ ΔT ）を測定し、下記の式（1）に基づいて熱抵抗値を算出した。

【0059】

$$\text{熱抵抗値 (}^\circ\text{C/W)} = \text{温度差 (}^\circ\text{T)} / \text{ヒータ発熱量 (W)} \quad \dots (1)$$

【0060】

【表3】

	実施例 1	実施例 2	実施例 3
熱抵抗値 ($^\circ\text{C/W}$)	0.87	0.86	0.81
	比較例 1	比較例 2	比較例 3
熱抵抗値 ($^\circ\text{C/W}$)	1.12	0.98	1.03
	実施例 4	実施例 5	実施例 6
熱抵抗値 ($^\circ\text{C/W}$)	0.86	0.86	0.87

各実施例に比べ各比較例は、いずれも熱抵抗値が高くなった。比較例1～3は、酸化アルミニウム粉末が均一分散していないために熱抵抗値が高くなった。

【0061】加えて、前記と同様にして次のような熱伝導性成形体を作製した。すなわち、実施例1～6及び比較例1～3の酸化アルミニウム粉末400重量部を比較的大きい粒子の酸化アルミニウム粉末（昭和電工株式会社製、商品名AS-10、平均粒径39 μ m）250重量部とともにシリコンゴム100重量部に配合した。得られた組成物を前記と同様の成形条件で成形して熱伝導性成形体を作製した。その熱伝導性成形体について熱抵抗値を測定し、その結果を表4に示した。

【0062】

【表4】

	実施例1	実施例2	実施例3
熱抵抗値 ($^{\circ}\text{C}/\text{W}$)	1.43	1.42	1.37
	比較例1	比較例2	比較例3
熱抵抗値 ($^{\circ}\text{C}/\text{W}$)	1.69	1.55	1.60
	実施例4	実施例5	実施例6
熱抵抗値 ($^{\circ}\text{C}/\text{W}$)	1.42	1.42	1.43

各実施例に比べ各比較例は、いずれも熱抵抗値が高くなった。また、炭素繊維に代えて比較的大きい粒子の酸化アルミニウム粉末を用いたことから、前記の熱伝導性成形体に比べて熱抵抗値が高くなった。

【0063】なお、前記実施形態の構成を次のように変更して実施することもできる。

・ 酸化アルミニウム粒子の形状を球状とし、その平均粒径から表面積を算出し、その算出値に基づいて酸化アルミニウム粒子の表面全体を被覆するようにナノ粒子の平均粒径からナノ粒子の使用量を算出することもできる。

【0064】・ ナノ粒子の表面又は酸化アルミニウム粒子の表面に、ナノ粒子が酸化アルミニウム粒子の表面に付着しやすいようにするための粘着性物質を被覆しておくこともできる。

【0065】・ 前述したナノ粒子に加え、そのナノ粒子より平均粒径が大きく、ミクロンオーダーの酸化アルミニウム粒子の平均粒径より小さい平均粒径を有する粒*

* 子よりなる微粉末を配合して酸化アルミニウム粉末組成物を調製することもできる。

【0066】・ 熱伝導性成形体には、熱伝導性充填剤以外のその他添加剤として例えば可塑剤、粘着剤、補強剤、耐熱向上剤等を配合することもできる。さらに、実施形態より把握される技術的思想について以下に記載する。

【0067】・ 前記平均粒径が1～20 μ mの粒子の形状は球状である請求項1から請求項3のいずれか一項に記載の酸化アルミニウム粉末組成物。このように構成した場合、酸化アルミニウム粉末組成物中の酸化アルミニウム粒子の分散性を良好に保持することができる。

【0068】・ 前記ナノ粒子は、カップリング剤で表面処理されているものである請求項1から請求項3のいずれか一項に記載の酸化アルミニウム粉末組成物。このように構成した場合、ナノ粒子の分散性、延いては酸化アルミニウム粒子の分散性を向上させることができる。

【0069】

【発明の効果】本発明は以上のように構成されているため、次のような効果を奏する。請求項1に記載の発明の酸化アルミニウム粉末組成物によれば、酸化アルミニウム粉末の凝集の発生を抑制し、分散性を向上させることができる。

【0070】請求項2に記載の発明の酸化アルミニウム粉末組成物によれば、請求項1に記載の発明の効果を有効かつ確実に発揮させることができる。請求項3に記載の発明の酸化アルミニウム粉末組成物によれば、請求項1又は請求項2に記載の発明の効果に加え、熱伝導性及び絶縁性を向上させることができる。

【0071】請求項4に記載の発明の熱伝導性成形体によれば、酸化アルミニウム粉末を高分子マトリックス中に容易かつ均一に分散させることができ、良好な熱伝導性を発揮することができる。

【0072】請求項5に記載の発明の熱伝導性成形体によれば、請求項4に記載の発明の効果に加え、熱伝導性を高めることができる。請求項6に記載の発明の熱伝導性成形体によれば、請求項4又は請求項5に記載の発明の効果に加え、熱伝導性及び絶縁性を向上させることができる。

フロントページの続き

(51)Int.Cl.

C09C 3/00

識別記号

FI

C09C 3/00

テームコード(参考)

Fターム(参考) 4F071 AA01 AB18 AD02 AE22 AF44
BA01 BB05 BC07
4G076 AA02 BC08 CA02 CA04 CA26
DA20
4J002 AC011 AC031 AC061 AC081
AC091 BB001 BB031 BB061
BB121 BB151 BB171 BB181
BB231 BC031 BC061 BD041
BD121 BD151 BF031 BG051
BG101 BN151 BP011 CB001
CC031 CD001 CF001 CF051
CF061 CF071 CF211 CG001
CK021 CL001 CL061 CM041
CP031 DA027 DA077 DE077
DE146 DE147 DF017 DJ007
DK007 FA047 FB076 FD206
FD207 GQ00
4J037 AA25 CA02 CA12 CA16 CA24
DD01 DD05 DD11 EE02 EE28
FF13 FF15